第29卷 第6期 材 料 研 究 学 报 Vol. 29 No. 6
2015 年 6 月 CHINESE JOURNAL OF MATERIALS RESEARCH June 2015

激光冲击处理超细晶粒高碳钢的微观组织和力学性能*

熊 毅[1,2] 李鹏燕[1] 陈路飞[1] 路 妍[1] 王俊北[1] 任凤章[1,2]

1. 河南科技大学材料科学与工程学院 洛阳 471023

2. 有色金属共性技术河南省协同创新中心 洛阳 471023

摘 要 借助扫描电子显微镜(SEM)、透射电子显微镜(TEM)、微力材料拉伸试验机和显微硬度计等手段, 研究了超细晶粒高碳钢多道次激光冲击强化(LSP)处理后的微观组织演变和力学性能的变化规律。结果表明, 强激光诱导冲击波超高应变率变形使超细晶粒高碳钢微复相组织中等轴铁素体晶粒的直径和球化完全的渗碳体颗粒的粒径分别由400 nm和150 nm进一步细化至200 nm和100 nm左右, 使力学性能指标和显微硬度得到明显提高, 塑性指标也有一定程度的改善, 但是断口形貌由韧性断裂特征向准解理和韧性混合型断裂转变。

关键词 金属材料, 激光冲击处理, 超细晶粒高碳钢, 微观组织, 力学性能

分类号 TG142 文章编号 1005-3093(2015)06-0469-06

Microstructure and Mechanical Properties of Laser Shocked an Ultra-fine Grained High Carbon Steel

XIONG Yi[1,2**] LI Pengyan[1] CHEN Lufei[1] LU Yan[1] WANG Junbei[1] REN Fengzhang[1,2]

1. School of Materials Science and Engineering, Henan University of Science and Technology, Luoyang 471023, China

2. Henan Collaborative Innovation Center of Nonferrous Metals Generic Technology, Luoyang 471023, China

*Supported by National Natural Science Foundation of China Nos. 50801021&51201061, the Program for Young Key Teachers in Henan Province No. 2011GGJS-070, Research Project Supported by Open Fund of Jiangsu Provincial Key Laboratory for Science and Technology of Photon Manufacturing No.GZ201204.

Manuscript received November 21, 2014; in revised form December 19, 2014.

**To whom correspondence should be addressed, Tel: (0379)64231269, E-mail: xy_hbdy@163.com

ABSTRACT Microstructure and mechanical properties of the ultra-fine grained high carbon steel Fe-0.8C after multiple laser shock processing (LSP) were investigated by using scanning electron microscopy (SEM), transmission electron microscopy (TEM), mini-tensile tests and microhardness measurements. The results show that the ultrafine micro-duplex structure (ferrite+cementite) of the steel was obviously refined due to the ultra-high plastic strain induced by LSP. Equiaxed ferrite grains were refined from 400 nm to 200 nm and the particle diameter of cementite lamellae decreased from 150 nm to 100 nm. Accordingly, the strength and microhardness increased greatly and the plasticity was also improved. However, the tensile fracture morphology changed from typical ductile fracture to a mixture of quasi-cleavage and ductile fracture after LSP.

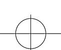
KEY WORDS metallic materials, laser shock processing, ultra-fine grained high carbon steel, microstructure, mechanical properties

激光冲击强化, 是一种利用强脉冲激光诱导的等离子爆轰波对金属材料表面实施超高应变速率变形的表面改性技术[1]。它不同于激光熔覆、激光合金化等伴随着高温熔化与凝固热过程的表面改性方法, 属于典型的冷加工技术[2]。激光诱导产生的冲击波峰值应力大于材料的动态屈服强度, 使金属表面发生塑性变形, 在材料表层内产生密集、稳定位错结构的同时产生数百MPa的残余压应力, 能提高材料的强度[3]、耐磨性[4]、耐腐蚀性[5]和疲劳寿命[6], 在航

* 国家自然科学基金50801021和5120106,河南省高等学校青年骨干教师项目2011GGJS-070,江苏省光子制造科学与技术重点实验室开放基金GZ201204资助项目。

2014年11月21日收到初稿; 2014年12月19日收到修改稿。

本文联系人: 熊 毅



空和先进制造领域有较好的应用前景。激光冲击强化适用于钛合金[7]、镁合金[8]、铝合金[9]、铜合金[10]、奥氏体不锈钢[11]及碳钢[12]等的冷加工。但是，上述研究的内容都仅限于传统粗晶材料在LSP超高应变速率变形下的组织响应及性能变化等，对晶粒尺度位于亚微米量级的超细晶材料LSP处理后的组织演变及性能变化关注较少。与传统粗晶材料相比，超细晶材料具有一系列不寻常的物理、化学和力学性能，广泛应用于工业生产以取代传统的粗晶材料。研究超细晶材料在激光冲击超高应变速率变形条件下的微观组织演变和力学性能变化，有助于拓宽超细晶材料的应用范围。本文借助等通道角挤压(ECAP)大塑性变形手段对高碳珠光体钢进行多道次大温变形制备超细晶粒高碳钢，在此基础上研究超细晶粒高碳钢微复相组织多道次LSP冲击处理后的微观组织演变及其相应的力学性能变化规律。

1 实验方法

实验用材料为商用Fe-0.8C钢。为确保珠光体转变完全，将直径12 mm长度200 mm的棒料放入1000℃的热处理炉中保温30 min，然后迅速放入600℃的盐浴炉中保温30 min，随即水冷至室温。将试样加工成直径8.3 mm长度49 mm的ECAP温变形实验试棒。采用Bc方式[13]在变形温度为650℃时重复进行4道次的ECAP变形，每进行后续道次变形时，试样按同一方向旋转90°后置入模具。挤压时，为了减少模具内壁与试样表面接触部位的摩擦，在模具内壁、试样上涂一层添加适量石墨粉的MoS_2润滑剂。

用线切割机沿ECAP温变形4道次试样的轴向方向截取微拉伸试样，尺寸如图1a所示。将拉伸试样表面进行机械研磨，逐级打磨至镜面光滑，然后对拉伸试样标距段进行激光冲击处理实验。

使用Gaia-R系列高能量脉冲Nd-YAG激光器进行激光冲击处理实验，激光光斑的直径为3 mm，激光波长为1064 nm，脉宽为10 ns，重复频率为1 Hz，激光脉冲能量为6 J，搭接率为50%。冲击区域为微拉伸试样的标距段(2.5 mm×10 mm)，如图1b所示。将厚度为0.1 mm的铝箔粘贴在试样的抛光面，作为激光能量的吸收层，用流水作为激光冲击时的约束层，流水厚度控制在1-2 mm。在试样背面涂一层硅油作为吸波层，以防止冲击波从试样背面反射回去形成拉力波而对试样造成破坏。

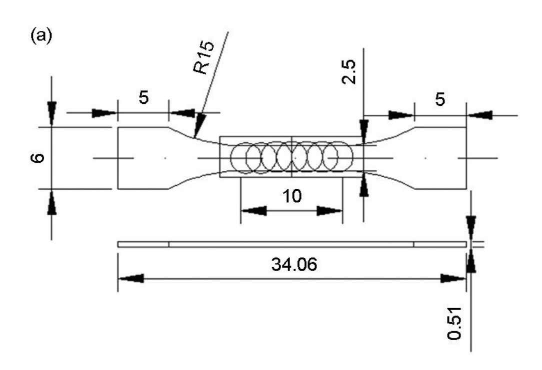
用线切割机将激光冲击前、后的试样沿轴向中心剖开制备金相试样，机械抛光后用4%硝酸酒精进行深侵蚀，用QUANTA FEG 650型场发射扫描电子显微镜观察纵截面的微观组织形貌，电子加速电压为20 kV。同时，将激光冲击处理后的试样沿冲击中心区域用线切割方法切取约0.5 mm的薄片，机械减薄至40 μm后在电解液为冰醋酸和7 %高氯酸的混合溶液中进行双喷电解减薄，电解电压30 V，电流50 mA。在减薄过程中采用液氮进行冷却，温度不高于-30℃，用JEM-2010型透射电子显微镜观察精细组织，电子加速电压为200 kV。

为了表征强脉冲激光诱导冲击波加载对超细晶钢微复相组织显微硬度的影响，在图1b所示阴影部位沿冲击试样轴向中心在HV-1000A型显微硬度计上每隔0.2 mm左右测量试样的硬度变化情况，载荷为2 N，加载时间为10 s，卸载时间为5 s。每个部位都测量五个不同的点，其测量值的算术平均值即为该处的硬度值。在Instron5948R型微力材料试验机上进行微拉伸试验，在JSM-5610LV型扫描电镜下观察拉伸断口，电子加速电压为25 kV。

2 结果和讨论

2.1 超细晶粒高碳钢LSP冲击后的微观组织

图2a、b给出了超细晶粒高碳钢LSP冲击处理前的原始组织形貌照片。其中图2a为扫描电镜照



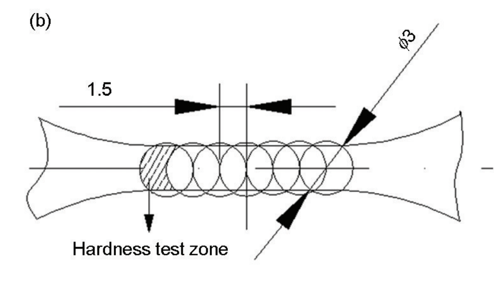


图1 微拉伸试样示意图(mm)

Fig.1 Dimension of mini-tensile sample (a) dimensions of the tensile sample; (b) partial enlargement drawing of the treated area subjected to LSP

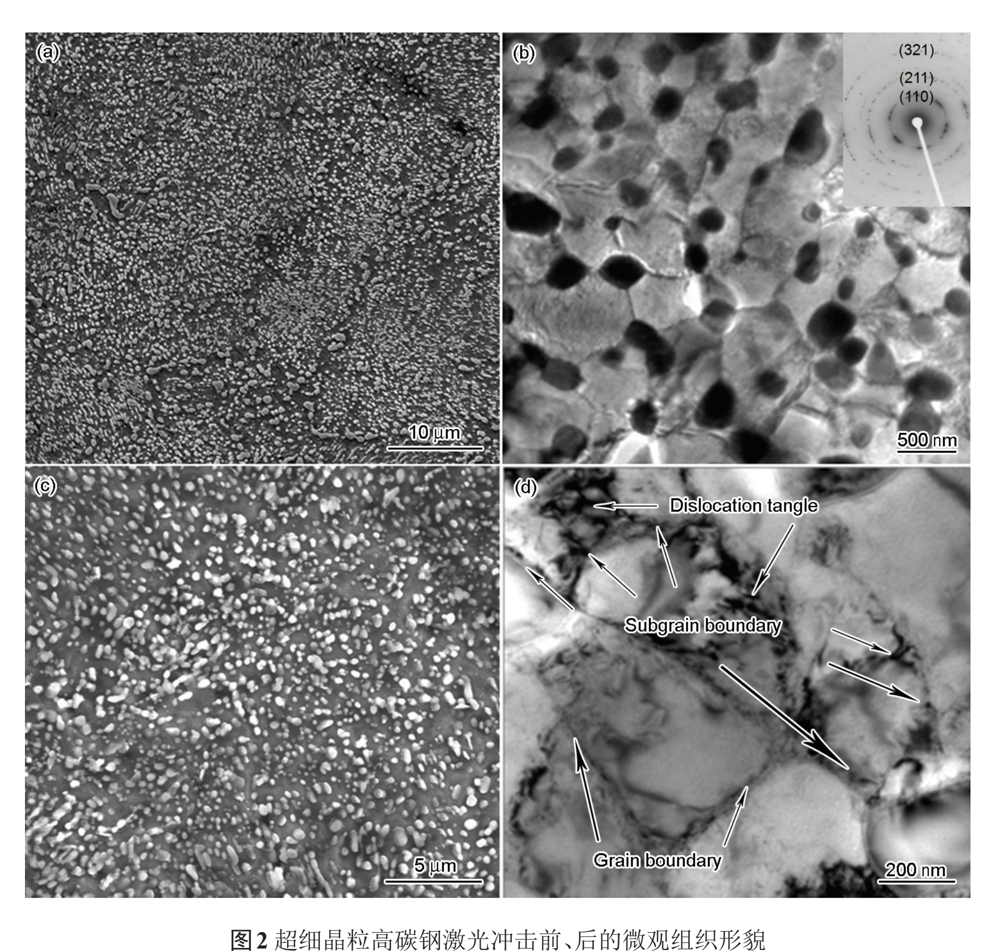


图2 超细晶粒高碳钢激光冲击前、后的微观组织形貌

Fig.2 Microstructure of ultra-fine grained high carbon steel before and after LSP (a) SEM, before LSP, (b) TEM, before LSP, (c) SEM, after LSP, (d) TEM, after LSP

片。从图中可以看出, 经过4道次ECAP温挤压后原始珠光体层片状形态已基本消失完全, 但依稀可见原始渗碳体片层的排布方向。为了协调ECAP强烈的剪切变形, 层片状渗碳体在发生弯曲、扭折的同时发生球化, 并且随着变形的加剧渗碳体的球化程度更加充分、完全。对应的透射电镜照片如图2b所示: 4道次ECAP变形后, 原始层片状珠光体组织完全演变成铁素体晶粒和完全球化的渗碳体颗粒构成的超微细复相组织, 铁素体晶粒直径和渗碳体颗粒的粒径均在亚微米量级, 等轴状铁素体晶粒尺寸约为400 nm, 渗碳体颗粒粒径约为150 nm。在珠光体温变形过程中, 铁素体的等轴化是与片层渗碳体球化相协调的过程。在温变形的初期珠光体中铁素体和片层渗碳体协调变形, 位错在铁素体/渗碳体相界面处产生, 随着变形的持续进行铁素体晶内的位错密度不断增加形成大量的位错缠结, 在动态回复的作用下进而形成亚晶界; 与此同时, 铁素体中不断增殖和累积的位错及亚晶界的形成加快了Fe和C原子的扩散, 促进了渗碳体片层的熔断球化。在渗碳体球化的同时亚晶界持续吸收位错, 并发生转动形成大角度晶界, 铁素体开始等轴化。变形程度越剧烈, 铁素体等轴化程度越充分完全[14-15]。ECAP温变形4道次后得到了超细的等轴铁素体和弥散分布的粒状渗碳体颗粒组成的复相组织, 对应的衍射花样中的多晶环特征非常明显, 表明不同取向的铁素体晶粒主要以大角度晶界为主[16, 17]。

图2c、d给出了超细晶粒高碳钢LSP冲击处理后的试样表层组织形貌照片。超细晶粒高碳钢微复相组织经过多道次LSP处理后, 渗碳体碎化程度更加充分、完全, 粒径由变形前的150 nm进一步细化至100 nm左右(图2c), 均匀地弥散分布于铁素体基体上。对应的透射电镜照片如图2d所示。纳秒量级的短脉冲强激光诱导冲击波加载作用于超细晶粒高碳钢微复相组织, 使铁素体基体内萌生出大量位错, 铁素体基体内的位错数量迅速增多, 导致位错密度急剧增大。与此同时, 位错之间相互作用也更加显著, 形成了数量众多的位错缠结, 伴随着应变的持续作用, 位错缠结程度加剧形成位错胞, 在动态回复的作用下位错胞进而演化为亚晶晶界, 形成了明显的胞状或块状的亚晶结构[18], 从而导致铁素体基体显著细化。其中等轴铁素体晶粒直径由变形前的400 nm进一步细化至200 nm左右, 类似的组织超细

化的研究结果也被文献[19-20]所报道。Lamiale等[21]借助于有限元软件基于位错粘塑性模型模拟了高应变速率冲击变形条件下超细晶材料的晶粒尺度变化规律。模拟结果表明,在高应变速率变形条件下超细晶材料晶粒尺寸能得到进一步细化,本文的结果也支持了该文献的结论。

2.2 超细晶粒高碳钢LSP冲击后的力学性能

图3给出了超细晶粒高碳钢LSP冲击前、后微拉伸试样的工程应力-应变曲线。从图3可见,LSP使超细晶粒高碳钢的抗拉强度和延伸率均呈现增大趋势,其中抗拉强度从810 MPa增至871 MPa,屈服强度从662 MPa增至685 MPa左右,相应的增幅分别为7.4%和3.5%;与此同时,对应的延伸率则从18%增至20%。其原因在于,LSP处理使冲击区域产生了严重的塑性变形,形成了很高的残余压应力。残余压应力的产生是由于激光冲击强化过程中等离子体充分吸收激光能量而迅速膨胀,并以冲击波的形式以超高应变速率作用于材料表面,使材料表面发生大塑性变形。其力学效应表现为高脉冲能量激光诱导的冲击波峰值压力超过材料动态屈服强度,产生大量位错组织,引发应变硬化,使材料表面产生了一定厚度的残余压应力层[22]。该压应力层抑制了拉伸形变过程中产生的裂纹的扩展速度,同时引起裂纹的闭合效应[23],导致裂纹扩展的有效驱动力降低,因而延长了裂纹扩展寿命。在这些因素的共同作用下,超细晶粒高碳钢LSP处理后相应的强度指标和延伸率也得到一定的提高。对应的拉伸断口形貌如图4所示。从图4可以看出,LSP冲击前断口形貌呈现出典型的韧性断裂特征,断面上密布着尺寸约在1 μm左右的细小韧窝;LSP冲击后断口形貌则为准解理和韧性混合型断裂特征,其中准解理断裂特征主要集中在试样表层。其原因在于LSP冲击处理使试样表层存在着一定深度的塑性变形层,其深度约在20 μm左右,如图4b所示。因此该塑性变形层的断口形貌明显异于铁素体基体,出现了许多解理面和解理台阶,呈现出典型的准解理断裂特征。LSP冲击后断口形貌表现为韧性和准解理的混合断裂特征,该现象与Lu[24]等多道次LSP处理LY2合金的研究结果一致。从图4b还可看出,LSP处理后在超细晶粒高碳钢组织内部形成了梯度结构,即随着距离冲击表面的距离的减小显微组织从位错线

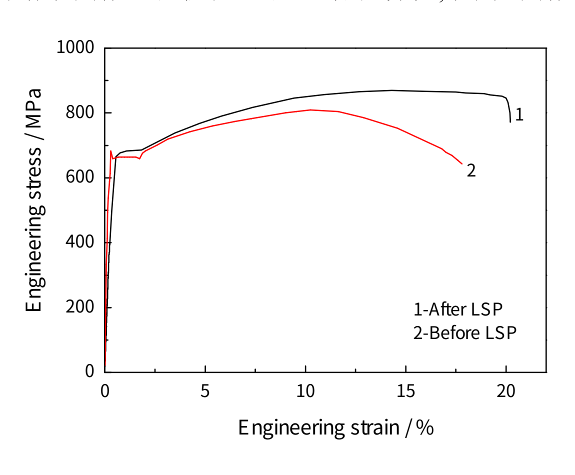


图3 超细晶粒高碳钢激光冲击前、后的工程应力-应变曲线

Fig.3 Engineering stress-strain curves of ultra-fine grained high carbon steel before and after LSP

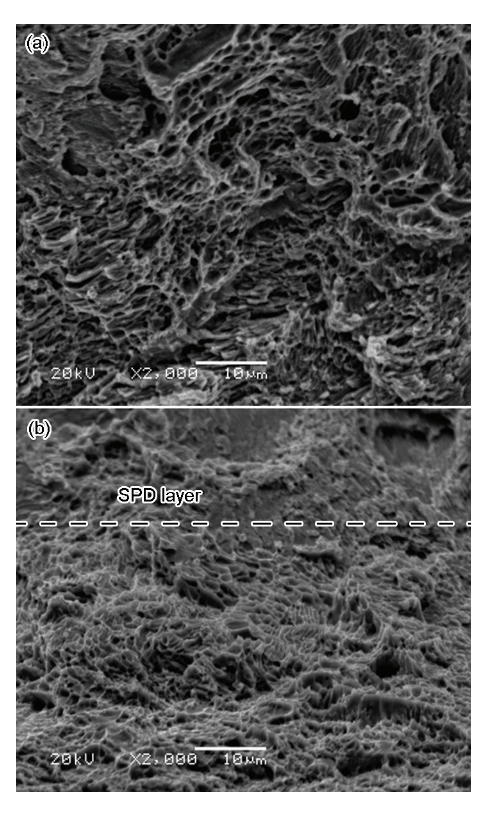


图4 超细晶粒高碳钢激光冲击前、后的断口形貌

Fig.4 Fracture morphology of ultra-fine grained high carbon steel before (a) and after LSP (b)

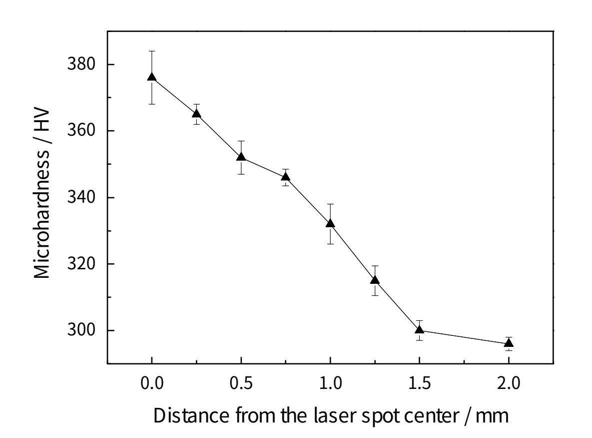


图5 超细晶粒高碳钢激光冲击后的显微硬度分布

Fig.5 Microhardness distribution of ultra-fine grained high carbon steel after LSP

变化(内部)到位错缠结和位错墙(次表层), 乃至最后演变成亚晶和超细化晶粒(外表层)。引起该现象的原因在于, 在激光冲击强化过程中的应变和应变率随着与冲击表面距离的增加而减小[18]。

超细晶粒高碳钢LSP处理后的显微硬度曲线, 如图5所示。从图5可见, LSP处理使试样表面硬度值明显增加。冲击区域的硬度明显比基体的高, 越靠近冲击中心区域, 其硬度值增幅越明显。其中超细晶粒高碳钢微复相组织的硬度从296HV(LSP前)增至冲击中心区域的376HV(LSP后), 增幅约为27%。在LSP超高应变速率变形条件下金属表层发生了严重塑性变形, 铁素体基体萌生出大量位错, 位错滑移程度加剧, 位错之间相互缠结形成位错胞, 使位错运动十分困难。同时, 在局部地区产生大量应力集中, 导致材料出现明显的加工硬化, 表现为硬度值的明显提高。与此同时, 铁素体基体组织进一步细化, 渗碳体颗粒的破碎程度也更加完全、充分, 渗碳体颗粒粒径也进一步减小, 均匀、弥散分布在铁素体基体之上; 随着冲击次数的增加还伴随着渗碳体发生部分溶解, 导致铁素体基体中碳原子处于过饱和状态[25]。因此, 在加工硬化、细晶强化以及固溶强化的共同作用下超细晶微复相组织冲击中心区域的显微硬度显著升高。

3 结 论

1. 用激光冲击强化技术可使超细晶粒高碳钢组织细化, 超细晶粒高碳钢微复相组织中等轴铁素体晶粒直径和球化完全的渗碳体颗粒粒径由激光冲击前的400 nm和150 nm进一步细化至200 nm和100 nm左右; 对应的力学性能指标和塑性指标也有着不同程度的提高。

2. 在加工硬化、细晶强化和固溶强化的共同作用下超细晶粒高碳钢微复相组织硬度从296 HV (LSP变形前)增至376 HV(LSP变形后), 抗拉强度和屈服强度分别从810 MPa、662 MPa(LSP变形前)增至871 MPa、685 MPa(LSP变形后), 塑性指标从变形前的18%增加至20%左右, 断口形貌也从典型的韧性断裂向准解理和韧性混合型断裂转变。

参 考 文 献

1 P. Peyre , R. Fabbro, Laser shock processing: a review of the physics and applications, Optical and Quantum Electronics, **27**, 1213 (1995)

2 C. S. Montross, T. Wei, L. Ye, G. Clark, Y. W. Mai, Laser shock processing and its effects on microstructure and properties of metal alloys: a review, International Journal of Fatigue, **24**(10), 1021(2002)

3 B. P. Fairand, B. A. Wilcox, W. J. Gallagher, Laser shock-induced microstructural and mechanical property changes in 7075 aluminum, Journal of Applied Physics, **43**, 3893(1972)

4 ZHONG Junwei, LU Jinzhong, LUO Kaiyu, YANG Chaojun, DAI Fengzhe, ZHONG Jinshan, WANG Qinwei, QI Han, ZHANG Lei, Tribological behaviors of laser shock processing AISI8620 steel, Chinese J.Lasers, **39**(1), 0103001(2012)
(钟俊伟, 鲁金忠, 罗开玉, 杨超君, 戴峰泽, 钟金杉, 王庆伟, 齐晗, 张 磊, AISI 8620合金钢激光冲击强化层摩擦学特性, 中国激光, **39**(1), 0103001(2012))

5 J. Z. Lu, K. Y. Luo, D. K. Yang, X. N. Cheng, J. L. Hu, F. Z. Dai, H. Qi, L. Zhang, J. S. Zhong, Q. W. Wang, Y. K. Zhang, Effects of laser peening on stress corrosion cracking (SCC) of ANSI 304 austenitic stainless steel, Corrosion Science, **60**, 145(2012)

6 X. C. Zhang, Y. K. Zhang, J. Z. Lu, F. Z. Xuan, Z. D. Wang, S. T. Tu, Improvement of fatigue life of Ti-6Al-4V alloy by laser shock peening, Materials Science and Engineering A, **527**, 3411(2010)

7 L. C. Zhou, Y. H. Li, W. F. He, G. Y. He, X. F. Nie, D. L. Chen, Z. L. Lai, Z. B. An, Deforming TC6 titanium alloys at ultra-high strain rates during multiple laser shock peening, Materials Science and Engineering A, **578**, 181(2013)

8 Y. K. Zhang, J. You, J. Z. Lu, C. Y. Cui, Y. F. Jiang, X. D. Ren, Effects of laser shock processing on stress corrosion cracking susceptibility of AZ31B magnesium alloy, Surface and Coatings Technology, **204**, 3947(2010)

9 S. Huang, J.Z. Zhou, J. Sheng, K.Y. Luo, J.Z. Lu, Z.C. Xu, X.K. Meng, L. Dai, L.D. Zuo, H.Y. Ruan , H.S. Chen, Effects of laser peening with different coverage areas on fatigue crack growth properties of 6061-T6 aluminum alloy, International Journal of Fatigue, **47**, 292(2013)

10 J. Cai, S. Shekhar, J. Wang, M. R.Shankar, Nanotwinned microstructures from low stacking fault energy brass by high-rate severe plastic deformation, Scripta Materialia, **60**, 599(2009)

11 X. D. Ren, D. W. Jiang, Y. K. Zhang, T. Zhang, H. B. Guan, X. M. Qian, Effects of laser shock processing on 00Cr12 mechanical properties in the temperature range from 25℃ to 600℃, Applied Surface Science, **257**, 1712(2010)

12 C. Ye, S. Suslov, B. J. Kim, E. A. Stach, G. J. Cheng, Fatigue performance improvement in AISI 4140 steel by dynamic strain aging and dynamic precipitation during warm laser shock peening, Acta Materialia, **59**, 1014(2011)

13 M. Furukawa, Y. lwahashi, Z. Horita, M. Nemoto, T. G. Langdon, The shearing characteristics associated with equal-channel angular pressing, Materials Science and Engineering A, **257**, 328(1998)

14 CHEN Wei, LI Longfei, YANG Wangyue, SUN Zuqing, HE Jianping, Microstructure evolution of hypereutectoid steels during warm deformation. Ⅰ.formation of equiaxial ferrite and effects of Al, Acta Metallurgica Sinica, **45**(2), 151(2009)
(陈 伟, 李龙飞, 杨王玥, 孙祖庆, 何建平, 过共析钢温变形过程中的组织演变 Ⅰ 铁素体的等轴化及Al的影响, 金属学报, **45**(2), 151(2009))

15 HUANG Qingsong, LI Longfei, YANG Wangyue, SUN Zuqing, Dynamic transformation of undercooling austenite and microstructure refinement in a eutectoid steel, Acta Metallurgica Sinica, **43**

(7), 724(2007)
(黄青松, 李龙飞, 杨王玥, 孙祖庆, 共析钢过冷奥氏体动态相变和组织细化, 金属学报, **43**(7), 724(2007))

16 CHEN Guoan, YANG Wangyue, SUN Zuqing, Microstructure evolution of medium carbon steel during deformation of undercooled austenite, Acta Metallurgica Sinica, **43**(1), 27(2007)
(陈国安, 杨王玥, 孙祖庆, 中碳钢过冷奥氏体形变过程中的组织演变, 金属学报, **43**(1), 27(2007))

17 Y. Xiong, S. H. Sun, Y. Li, J. Zhao, Z. Q. Lv, D. L. Zhao, Y. Z. Zheng, W. T. Fu, Effect of warm cross-wedge rolling on microstructure and mechanical property of high carbon steel rods, Materials Science and Engineering A, **431**, 152(2006)

18 J. Z. Lu, K. Y. Luo, Y. K. Zhang, C. Y. Cui, G. F. Sun, J. Z. Zhou, L. Zhang, J. You, K. M. Chen, J. W. Zhong, Grain refinement of LY2 aluminum alloy induced by ultra-high plastic strain during multiple laser shock processing impacts, Acta Materialia, **58**, 3984(2010)

19 J. Z. Lu, K. Y. Luo, Y. K. Zhang, G. F. Sun, Y. Y. Gu, J. Z. Zhou, X. D. Ren, X. C. Zhang, L. F. Zhang, K. M. Chen, C. Y. Cui, Y. F. Jiang, A. X. Feng, L. Zhang, Grain refinement mechanism of multiple laser shock processing impacts on ANSI 304 stainless steel, Acta Materialia, **58**, 5354(2010)

20 LUO Xinmin, MA Hui, ZHANG Jingwen, CHEN Kangmin, ZHANG Yongkang, LUO Kaiyu, Surface nano-crystallization of austenitic stainless steel induced by laser shocking, Chinese Journal of Lasers, **38**(6), 0603028(2011)
(罗新民, 马 辉, 张静文, 陈康敏, 张永康, 罗开玉, 激光冲击诱导的奥氏体不锈钢表层纳晶化, 中国激光, **38**(6), 0603028(2011))

21 V. Lemiale, Y. Estrin, H. S. Kim R. O. Donnell, Grain refinement under high strain rate impact: A numerical approach, Computational Materials Science, **48**, 124(2010)

22 KONG Dejun, ZHANG Yongkang, LU Jinzhon, ZOU Shikun, Mechanical properties of Ni-based superalloy by laser shock processing, Chinese Journal of Materials Research, **20**(5), 492(2006)
(孔德军, 张永康, 鲁金忠, 邹世坤, 激光冲击处理后Ni基高温合金的性能, 材料研究学报, **20**(5), 492(2006))

23 X. D. Ren, Y. K. Zhang, H. F. Yongzhuo, L. Ruan, D. W. Jiang, T. Zhang, K. M. Chen, Effect of laser shock processing on the fatigue crack initiation and propagation of 7050-T7451 aluminum alloy, Materials Science and Engineering A, **528**, 2899(2011)

24 J. Z. Lu, K. Y. Luo, Y. K. Zhang, J. Z. Zhou, X. G. Cui, L. Zhang, J. W. Zhong, Effects of laser shock processing and strain rate on tensile property of LY2 aluminum alloy, Materials Science and Engineering A, **528**, 730(2010)

25 XIONG Yi, HE Hongyu, LUO Kaiyu, GUO Zhiqiang, LU Yanjun, ZHANG Lingfeng, Effect of laser shock processing times on microstructure and microhardness of high carbon pearlitic steel, Chinese Journal of Lasers, **40**(4), 0403006(2013)
(熊 毅, 何红玉, 罗开玉, 郭志强, 卢艳君, 张凌峰, 激光冲击次数对高碳珠光体钢组织和硬度的影响, 中国激光, **40**(4), 0403006(2013))

